

ИССЛЕДОВАНИЕ АДсорбЦИИ ПЛАТИНОВЫХ КОМПЛЕКСОВ РАЗЛИЧНОЙ ГЕОМЕТРИИ НА ОСНОВНЫХ НОСИТЕЛЯХ СЛОИСТОЙ СТРУКТУРЫ ПРИ СИНТЕЗЕ КАТАЛИЗАТОРОВ $Pt/M^{2+}M^{3+}O_x$.

^{1,2}Бельская О.Б., ¹Степанова Л.Н., ^{1,2}Лихолобов В.А.

¹Институт проблем переработки углеводородов СО РАН, Нефтезаводская 54,
Омск 644040 E-mail: obelska@ihcp.ru

²Омский государственный технический университет, пр. Мира 11, Омск 644050

Платиновые катализаторы, полученные с использованием слоистых двойных гидроксидов (СДГ) в качестве предшественника носителя, являются объектом интенсивных исследований, поскольку актуальны не только в основном катализе, но и в превращении углеводородов. Особенности строения и свойства носителей данного типа оказывают существенное влияние на процессы закрепления металлокомплексного предшественника при синтезе катализаторов. Основное отличие от адсорбции на традиционных оксидных носителях заключается в возможности осуществления обмена между межслоевыми анионами СДГ и анионными комплексами платины. В то же время, в большинстве опубликованных исследований процессы, происходящие при закреплении платины, как правило, не контролируются, а обмен межслоевых анионов практически не исследован с точки зрения введения в виде анионных форм соединения предшественника активного компонента катализатора.

Анионообменные свойства СДГ определяются двумя основными параметрами: составом гидроксидных слоев и устройством межслоевого пространства. Поэтому целью данной работы являлось выяснение влияния природы межслоевого аниона СДГ, состава и соотношения M^{2+}/M^{3+} в гидроксидных слоях на характер взаимодействия носителя с анионными комплексами $Pt(0)$, $Pt(II)$ и $Pt(IV)$ и свойства формирующихся платиновых центров.

Для исследования свойств СДГ и соответствующих смешанных оксидов были использованы методы рентгенофазового (D8 Advance, Bruker) и термического анализа (STA-449C Jupiter, Netzsch), измерения изотерм адсорбции-десорбции азота (ASAP-2020, Micromeritics). Химический состав адсорбированных комплексов, динамика их восстановления и состояние нанесенной платины были охарактеризованы с применением ВМУ ЯМР ^{195}Pt (Avance-400, Bruker), ТПВ, хемосорбции H_2 и CO (AutoChem-2920, Micromeritics), РФЭС (SPECS), ПЭМВР (JEM-2010, JEOL). Влияние исследованных параметров на каталитические свойства платины оценивали в модельной реакции дегидрирования пропана (проточный реактор с неподвижным слоем катализатора, температура 550 °С, атмосферное давление, $H_2/C_3H_8 = 0.25$, массовая скорость подачи сырья 4 г/(г_{кат}•час)).

При исследовании роли состава носителя осуществлялось изменение соотношения M^{2+}/M^{3+} в диапазоне 2-4 и природы катионов: $M^{2+} = Mg, Zn$; $M^{3+} = Al, Ga$. В качестве предшественников активного компонента использовались анионные комплексы платины: хлоридные комплексы $[PtCl_6]^{2-}$ и $[PtCl_4]^{2-}$, а также карбонильные комплексы $[Pt_3(CO)_6]^{2-}$. Показано, что варьирование состава носителя и природы платиновых комплексов открывают возможности для целенаправленного регулирования механизма взаимодействия металлокомплексного предшественника с носителем, его локализации в структуре СДГ, формирования дисперсного и электронного состояния нанесенной платины. Катализаторы, полученные посредством закрепления платины в межслоевом пространстве носителя, характеризуются более высокой дегидрирующей активностью и стабильностью в условиях модельной реакции.